

10/069476



REC'D 10 NOV 2000	
WIPO	PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung
einer Patentanmeldung**

EP 00/08344

Aktenzeichen: 199 40 283.3

Anmeldetag: 25. August 1999

Anmelder/Inhaber: Professor Jörg Peter Schür,
Wegberg/DE

Bezeichnung: Pflanzenschutz

IPC: A 01 N 31/08

4

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 14. September 2000
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

[Signature]

Ebert

**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

Pflanzenschutz

Die vorliegende Erfindung betrifft Verfahren zum Schützen von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen vor Insekten und Insektenlarven und vor mikrobiellem Befall, umfassend das Verteilen oder Auftragen von speziellen insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzungen auf der Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile und/oder das Verteilen der Zusammensetzungen in der Pflanze und/oder dem Pflanzenbestandteil; Insektizide und Biozide, umfassend diese insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzungen sowie die Verwendung der insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzungen zur Behandlung von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen.

Pflanzen sind während ihres Anbaus und besonders nach der Ernte empfindlich gegenüber Schimmel, Bakterien, Insekten und Insektenlarven die die Qualität der Pflanzen oder des geernteten Pflanzenmaterials beeinträchtigen bzw. vernichten oder unbrauchbar machen. Darüber hinaus ist, insbesondere bei Pflanzen, die als Nahrungsmittel oder Futtermittel verwendet werden, ein großes Problem, daß durch Schimmel und Bakterien Toxine auf die Pflanzen und geernteten Pflanzenmaterialien aufgebracht werden, deren Verzehr für Mensch und Tier bedenklich ist. Insekten und Insektenlarven können besonders nach der Ernte, nämlich während der Lagerung bzw. im Zuge der Verarbeitung die Pflanzen kontaminieren oder vernichten. Diese Probleme werden noch dadurch erschwert, daß Biozide und Insektizide grundsätzlich eine Woche vor der Ernte abgesetzt werden müssen, so daß ein wirksamer antimikrobieller und insektizider Schutz zum Zeitpunkt der Ernte im allgemeinen nicht mehr vorliegt.

Es ist bekannt, daß Teebaumöl und Oreganoextrakte, wenn sie auf Pflanzen appliziert werden, als Repellant wirken, d. h. sie weisen eine gewisse insektizide Eigenschaft auf. Aus der JP-A-62126931 ist darüber hinaus bekannt, daß Gemüse zur Sterilisation mit einer wäßrigen Lösung besprüht werden kann, die ein Flavonoid, einen Alkohol wie Ethanol, Propylenglycol oder Glycerin, eine organische Säure

~~und/oder ein Calciumsalz enthält. Diese Mittel gewährten jedoch keinen hinreichen-~~
den Schutz der Pflanzen und Pflanzenbestandteile vor mikrobiellem und insektizi-
dem Befall. Weiterhin sind in der WO 96/29895 und WO 98/58540 Prozeßhilfsmittel
und Additive für Nahrungsmittel beschreiben, in denen spezielle antimikrobielle Zu-
sammensetzungen eingesetzt werden, die als antimikrobielle Bestandteile minde-
stens zwei GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aromastoffe enthalten

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung beruht darin, ein Verfahren bereitzustellen,
daß Pflanzen, insbesondere kurz vor oder nach der Ernte einen ausreichend antimi-
krobiellen und/oder insektiziden Schutz verleiht. Überraschenderweise wurde nun
gefunden, daß die aus der WO 96/29895 und WO 98/58540 bekannten Zusammen-
setzungen geeignete antimikrobielle Eigenschaften aufweisen, die sie für den vor-
liegenden Zweck geeignet scheinen läßt. Insbesondere wurde gefunden, daß diese
Zusammensetzungen nicht nur als Repellant wirken, sondern *in vivo* auch Insekten
und Insektenlarven am Wachstum oder der Vermehrung hindern. Schließlich wurde
gefunden, daß unter diesen Zusammensetzungen die benzylalkoholhaltigen Zu-
sammensetzungen eine besonders hohe antimikrobielle und insektizide Aktivität
aufweisen. Aufgrund der Tatsache, daß sie toxikologisch unbedenklich sind, können
diese Zusammensetzungen ebenfalls kurz vor oder nach der Ernte verwendet wer-
den.

Gegenstand der vorliegenden Anmeldung ist demgemäß

(1) ein Verfahren zum Schützen von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen vor In-
sekten und Insektenlarven, umfassend

- das Verteilen oder Auftragen einer insektiziden Zusammensetzung auf der Ober-
fläche der Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile und/oder

- das Verteilen der insektiziden Zusammensetzung in der Pflanze oder dem Pflan-
zenbestandteil,

wobei die insektizide Zusammensetzung wenigstens zwei GRAS(Generally
Recognize As Safe)-Aromastoffe enthält;

(2) eine bevorzugte Ausführungsform des in (1) definierten Verfahrens, wobei die
antimikrobielle Zusammensetzung

(a) eine oder mehrere GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate und

(b) einen oder mehrere Aromastoffe, ausgewählt aus

(b1) Polyphenolverbindungen und

(b2) GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate,

enthält;

(3) eine bevorzugte Ausführungsform des in (1) und (2) definierten Verfahrens, wobei die insektizide Zusammensetzung den GRAS-Aroma-Alkohol Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil enthält;

(4) ein Verfahren zum Schützen von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen vor mikrobiellem Befall, umfassend

- das Verteilen oder Auftragen einer antimikrobiellen Zusammensetzung auf der Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile und/oder

- das Verteilen der antimikrobiellen Zusammensetzung in der Pflanze und/oder dem Pflanzenbestandteil,

wobei die antimikrobielle Zusammensetzung den GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aroma-Alkohol Benzylalkohol und wenigstens einen weiteren GRAS-Aromastoff enthält;

(5) eine bevorzugte Ausführungsform des in (4) definierten Verfahrens, wobei die antimikrobielle Zusammensetzung

(a1) Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil und gegebenenfalls

(a2) einen oder mehrere weitere GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate und

(b1) eine oder mehrere Polyphenolverbindungen und/oder

(b2) eine oder mehrere GRAS-Säuren oder deren Derivate

enthält;

(6) ein Insektizid und/oder Repellent, umfassend eine wie in (1) bis (3) definierte insektizide Zusammensetzung;

(7) ein Biozid, insbesondere ein Fungizid und Bakterizid umfassend eine wie in (4) und (5) definierte antimikrobielle Zusammensetzung;

(8) die Verwendung der in (1) bis (3) definierten Zusammensetzung zur Behandlung von Pflanzen und Pflanzenbestandteilen; und

(9) die Verwendung der in (4) und (5) definierten Zusammensetzung zur Behandlung von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen.

Der Begriff "Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile" im Sinne der vorliegenden Erfindung ist dabei wie folgt zu verstehen: Während der Anzucht, dem Anbau bis hin zur Ernte spricht man von lebensfähigen Organismen, d. h. "Pflanzen". Beim Erntevorgang wird die Pflanze in einzelne Bestandteile zerteilt, diese aus Pflanzenmaterial bestehenden Bestandteile sind hier als "Pflanzenbestandteile" bezeichnet.

Im folgenden werden die erfindungsgemäß einsetzbaren Stoffe im einzelnen näher beschrieben:

Die vorstehend in (1), (2), (4) und (5) genannten GRAS-Aromastoffe, GRAS-Aroma-Alkohole und GRAS-Aromasäuren sind von der FDA-Behörde zur Verwendung in Nahrungsmitteln als gewerbesicher anerkannt (GRAS = Generally Recognized As Safe In Food). Bei den erwähnten GRAS-Aromastoffen handelt es sich um solche Verbindungen, die in FEMA/FDA GRAS Flavour Substances Lists GRAS 3-15 Nr. 2001-3815 (Stand 1997) genannt sind. In dieser Liste sind natürliche und naturidentische Aromastoffe aufgeführt, die von der amerikanischen Gesundheitsbehörde FDA zur Verwendung in Nahrungsmitteln zugelassen sind: FDA Regulation 21 CFR 172.515 für naturidentische Aromastoffe (Synthetic Flavoring Substances and Adjuncts) und FDA Regulation 21 CFR 182.20 für natürliche Aromastoffe (Natural Flavoring Substances and Adjuncts). Geeignete GRAS-Aromastoffe gemäß der vorliegenden Erfindung sind z. B. (a) GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate, (b1) Polyphenolverbindungen, (b2) GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate, (c) Phenole oder deren Derivate, (d) Ester, (e) Terpene, (f) Acetale, (g) Aldehyde und (h) etherische Öle.

Im einzelnen können beispielsweise folgende GRAS-Aroma-Alkohole zum Einsatz kommen:

Benzylalkohol, Acetoin (Acetylmethylcarbinol), Ethylalkohol (Ethanol), Propylalkohol (1-Propanol), iso-Propylalkohol (2-Propanol, Isopropanol), Propylenglykol, Glycerin, n-Butylalkohol (n-Propylcarbinol), iso-Butylalkohol (2-Methyl-1-propanol), Hexylalkohol (Hexanol), L-Menthol, Octylalkohol (n-Octanol), Zimtalkohol (3-Phenyl-2-propen-1-ol), α -Methylbenzylalkohol (1-Phenylethanol), Heptylalkohol (Heptanol), n-Amylalkohol (1-Pentanol), iso-Amylalkohol (3-Methyl-1-butanol), Anisalkohol (4-Methoxy-

benzylalkohol, p-Anisalkohol), Citronellöl, n-Decylalkohol (n-Decanol), Geraniol, β - γ -Hexanol (3-Hexenol), Laurylalkohol (Dodecanol), Linalool, Nerolidol, Nonadienol (2,6-Nonadien-1-ol), Nonylalkohol (Nonanol-1), Rhodinol, Terpeneol, Borneol, Cineol (Eucalyptol), Anisol, Cuminylalkohol (Cuminol), 10-Undecen-1-ol, 1-Hexadecanol. Als Derivate können sowohl natürliche oder naturidentische Derivate als auch synthetische Derivate eingesetzt werden. Geeignete Derivate sind z. B. die Ester, Ether und Carbonate der vorstehend genannten GRAS-Aroma-Alkohole. Besonders bevorzugte GRAS-Aroma-Alkohole sind Benzylalkohol, 1-Propanol, Glycerin, Propylen-glycol, n-Butylalkohol, Citronellol, Hexanol, Linalool, Acetoin und deren Derivate.

Als Komponente (b1) können die folgenden Polyphenole eingesetzt werden:

Brenzcatechin, Resorcin, Hydrochinon, Phloroglucin, Pyrogallol, Cyclohexan, Res-veratrol, Usninsäure, Acylpolyphenole, Lignine, Anthocyane, Flavone, Catechine, Gallussäurederivate (z. B. Tannine, Gallotannin, Gerbsäuren, Gallus-Gerbsäuren), Carnosol, Carnosolsäure (einschließlich deren Derivate wie (2,5-Dihydroxy-phenyl)carboxyl- und (2,5-Dihydroxyphenyl)alkylencarboxylsubstitutionen, Salze, Ester, Amide), Kaffesäure und deren Ester und Amide, Flavonoide (z. B. Flavon, Flavonol, Isoflavon, Gossypetin, Myrecetin, Robinetin, Apigenin, Morin, Taxifolin, Eriodictyol, Naringin, Rutin, Hesperidin, Troxerutin, Chrysin, Tangeritin, Luteolin, Catechine, Quercetin, Fisetin, Kaempferol, Galangin, Rotenoide, Aurone, Flavonole, Diole), Extrakte aus z. B. Camellia Primula. Weiterhin können auch deren mögliche Derivate, z. B. Salze, Säuren, Ester, Oxide und Ether verwendet werden. Das be-sonders bevorzugte Polyphenol ist Tannin (eine GRAS-Verbindung).

Als Komponente (b2) können beispielsweise folgende GRAS-Säuren zum Einsatz kommen:

Essigsäure, Aconitsäure, Adipinsäure, Ameisensäure, Apfelsäure (1-Hydroxybern-steinsäure), Capronsäure, Hydrozimtsäure (3-Phenyl-1-propionsäure), Pelargon-säure (Nonansäure), Milchsäure (2-Hydroxypropionsäure), Phenoxyessigsäure (Glykolsäurephenylether), Phenylessigsäure (α -Toluolsäure), Valeriansäure (Pentansäure), iso-Valeriansäure (3-Methylbutansäure), Zimtsäure (3-Phenylpropen-säure), Citronensäure, Mandelsäure (Hydroxyphenylessigsäure), Weisäure (2,3-

Dihydroxybutandisäure; 2,3-Dihydroxybernsteinsäure), Fumarsäure, Tanninsäure und deren Derivate.

Geeignete Derivate der GRAS-Aromasäuren im Sinne der vorliegenden Erfindung sind Ester (z. B. C₁₋₆-Alkylester und Benzylester), Amide (einschließlich N-substituierte Amide) und Salze (Alkali-, Erdalkali- und Ammoniumsalze der vorstehend genannten Säuren zu verstehen. Ebenfalls umfassen Derivate im Sinne der vorliegenden Erfindung Modifikationen der Seitenketten-Hydroxyfunktionen (z. B. Acyl- und Alkylderivate) und Modifikationen der Doppelbindungen (z. B. die perhydrierten und hydroxilierten Derivate der genannten Säuren).

Als Komponente (c) können folgende Phenolverbindungen zum Einsatz kommen:

Thymol, Methyleugenol, Acetyleneugenol, Safrol, Eugenol, Isoeugenol, Anethol, Phenol, Methylchavicol (Estragol; 3-4-Methoxyphenyl-1-propen), Carvacrol, α -Bisabolol, Farnesol, Anisol (Methoxybenzol) und Propenylguaethol (5-Propenyl-2-ethoxaphenol) und deren Derivate. Derivate im Sinne der vorliegenden Erfindung sind Verbindungen, in denen die phenolische Hydroxylgruppe verestert oder verethert ist.

Als GRAS-Ester (Komponente (d)) kommen beispielsweise Allicin und die folgenden Acetate Iso-Amylacetat (3-Methyl-1-butylacetat), Benzylacetat, Benzylphenylacetat, n-Butylacetat, Cinnamylacetat (3-Phenylpropenylacetat), Citronellylacetat, Ethylacetat (Essigester), Eugenolacetat (Acetyleneugenol), Geranylacetat, Hexylacetat (Hexanylethanoat), Hydrocinnamylacetat (3-Phenyl-propylacetat), Linalylacetat, Octylacetat, Phenylethylacetat, Terpinylacetat, Triacetin (Glyceryltriacetat), Kaliumacetat, Natriumacetat und Calciumacetat zum Einsatz. Weitere geeignete Ester sind die Esterderivate der vorstehend definierten Säuren (Komponente (b2)).

Als Terpene (Komponente (e)) kommen z. B. Campher, Limonen und β -Caryophyllen in Betracht.

Zu den verwendbaren Acetalen (Komponente (f)) zählen z. B. Acetal, Acetaldehyddi-butylacetal, Acetaldehyddipropylacetal, Acetaldehydphenethylpropylacetal, Zimtal-

dehydethylenglycolacetal, Decanaldimethylacetal, Heptanaldimethylacetal, Heptanalglycerylacetal und Benzaldehydpropylenglykolacetal.

Als Aldehyde (Komponente (g)) sind z. B. Acetaldehyd, Anisaldehyd, Benzaldehyd, iso-Butylaldehyd (Methyl-1-propanal), Citral, Citronellal, n-Caprylaldehyd (n-Decanal), Ethylvanillin, Fufurol, Heliotropin (Piperonal), Heptylaldehyd (Heptanal), Hexylaldehyd (Hexanal), 2-Hexenal (β -Propylacrolein), Hydrozimtaldehyd (3-Phenyl-1-propanal), Laurylaldehyd (Docdecanal), Nonylaldehyd (n-Nonanal), Octylaldehyd (n-Octanal), Phenylacetaldehyd (1-Oxo-2-phenylethan), Propionaldehyd (Propanal), Vanillin, Zimtaldehyd (3-Phenylpropenal), Perillaaldehyd und Cuminaldehyd verwendbar.

Erfindungsgemäß einsetzbar sind beispielsweise auch die im folgenden aufgeführten etherischen Öle und/oder die alkoholischen, glykolischen oder durch CO₂-Hochdruckverfahren erhaltenen Extrakte aus den genannten Pflanzen (Komponente (h)):

(h1) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Alkoholen: Melisse, Koriander, Kardamon, Eukalyptus;

(h2) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Aldehyden: Eukalyptus citriodora, Zimt, Zitrone, Lemongras, Melisse, Citronella, Limette, Orange;

(h3) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Phenolen: Oreganum, Thymian, Rosmarin, Orange, Nelke, Fenchel, Campher, Mandarine, Anis, Cascarille, Estragon und Piment;

(h4) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Acetaten: Lavendel;

(h5) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Estern: Senf, Zwiebel, Knoblauch;

(h6) Öle bzw. Extrakte mit hohem Anteil an Terpenen: Pfeffer, Pomeranze, Kümmel, Dill, Zitrone, Pfefferminz, Muskatnuß.

Eine bevorzugte Ausführungsform der insektiziden Zusammensetzung (1) enthält wenigstens einen GRAS-Aroma-Alkohol (a), insbesondere Benzylalkohol. Dabei sind solche Zusammensetzungen bevorzugt, die weniger als 50 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 30 Gew.-%, besonders bevorzugt weniger als 20 Gew.-%, Ethanol, Isopropanol oder Benzylalkohol oder eines Gemisches dieser Stoffe enthalten.

In einer anderen bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält die insektizide Zusammensetzung wenigstens einen hydrophilen, alkoholischen GRAS-Aromastoff und/oder einen hydrophilen, nichtalkoholischen GRAS-Aromastoff. Der Anteil der hydrophilen, alkoholischen GRAS-Aromastoffe darf bis zu 99 Gew.-% der insektiziden Zusammensetzung betragen und beträgt vorzugsweise 30 bis 98 Gew.-%, besonders bevorzugt 80 bis 95 Gew.-%. Der Anteil der hydrophilen, nichtalkoholischen GRAS-Aromastoffe in der insektiziden Zusammensetzung darf bis zu 90 Gew.-% betragen und beträgt vorzugsweise 0,1 bis 50 Gew.-%. Dabei sind solche Zusammensetzungen bevorzugt, die neben den genannten hydrophilen Verbindungen weiterhin Benzylalkohol und/oder eine Polyphenolverbindung (b1) enthalten.

Hydrophile, alkoholische GRAS-Aromastoffe sind dabei einwertige oder mehrwertige Alkohole mit 2 - 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 2 - 7 C-Atomen. Besonders bevorzugte Verbindungen sind 1-Propanol, Glycerin, Propylenglykol und Acetoin. Hydrophile, nichtalkoholische GRAS-Aromastoffe sind ausgewählt aus organischen Säuren mit 1 - 15 C-Atomen und physiologisch akzeptablen Salzen derselben, hydrophilen Acetaten und hydrophilen Aldehyden. Bevorzugte organische Säuren sind solche mit 2 - 10 C-Atomen und insbesondere Essigsäure, Acronitsäure, Ameisensäure, Apfelsäure, Milchsäure, Phenylelessigsäure, Zitronensäure, Mandelsäure, Weinsäure, Fumarsäure, Tanninsäure, Hydrozimtsäure und deren physiologisch akzeptablen Salze. Das hydrophile Acetat ist vorzugsweise ausgewählt aus Allicin, Triacetin, Kaliumacetat, Natriumacetat und Calciumacetat und der hydrophile Aldehyd ist vorzugsweise ausgewählt aus Furfurol, Propionaldehyd und Vanillin.

Weitere bevorzugte insektizide Zusammensetzungen sind die vorstehend unter (2) und (3) angeführten Zusammensetzungen. Die unter (2) definierte insektizide Zusammensetzung kann dabei

0,1 bis 99,9 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 99 Gew.-%, Komponente (a),
 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-%, Komponente (b1) und
 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-%, Komponente (b2)
 enthalten.

Die Komponente (a) enthält in dieser Ausführungsform der Erfindung einen oder mehrere GRAS-Aroma-Alkohole. Bevorzugt ist der Einsatz von zwei oder drei GRAS-Aroma-Alkoholen. Das Mischungsverhältnis der Komponente (a) zu Komponenten (b) liegt vorzugsweise zwischen 10.000 : 1 und 1 : 10.000, besonders bevorzugt zwischen 1000 : 1 und 1:1000 und ganz besonders bevorzugt zwischen 100 : 1 und 1 : 100.

In dem vorstehend unter (4) definierten erfindungsgemäßen Verfahren sind die weiteren GRAS-Aromastoffe die im Zusammenhang mit der insektiziden Zusammensetzung definierten GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate (a) mit Ausnahme von Benzylalkohol, Polyphenolverbindungen (b1), Säuren (b2), Phenole (c), Ester (d), Terpene (e), Acetale (f), Aldehyde (g) und etherischen Öle (h).

Bevorzugte antimikrobiellen Zusammensetzungen im Sinne der vorliegenden Erfindung sind solche, die weniger als 50 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 30 Gew.-%, besonders bevorzugt weniger als 20 Gew.-% Benzylalkohol oder eines Gemisches von Benzylalkohol mit Ethanol und/oder Isopropanol enthalten.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform der vorliegenden Erfindung enthält die antimikrobielle Zusammensetzung wenigstens einen hydrophilen, alkoholischen GRAS-Aromastoff und/oder einen hydrophilen, nichtalkoholischen GRAS-Aromastoff. Bezüglich des Anteils der hydrophilen Verbindung und hinsichtlich besonders bevorzugter hydrophiler Verbindungen wird auf die vorstehend im Zusammenhang mit der insektiziden Zusammensetzung erwähnte Angabe verwiesen. Besonders bevorzugt in diesem Zusammenhang sind solche antimikrobielle Zusammensetzungen, die neben Benzylalkohol und den genannten hydrophilen GRAS-Aromastoffen noch Polyphenolverbindungen enthalten.

Wie vorstehend unter (3) und (5) erwähnt, enthält die insektizide oder antimikrobielle Zusammensetzung in einer besonders bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens

(a1) Benzylalkohol als notwendigen Bestandteil und gegebenenfalls

-
- (a2) einen oder mehrere weitere GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate und
 - (b1) eine oder mehrere Polyphenolverbindungen und/oder
 - (b2) eine oder mehrere GRAS-Säuren oder deren Derivate.

Geeignete Mengen der Komponenten (a1), (a2), (b1) und (b2) in der vorstehend definierten insektiziden und antimikrobiellen Zusammensetzung sind dabei:

0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,1 bis 75 Gew.-% Benzylalkohol;

0 bis 99,8 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 99 Gew.-% Komponente (a2);

0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-% Komponente (b1) und/oder

0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-% Komponente (b2).

Die besonders bevorzugte insektizide und antimikrobielle Zusammensetzung kann weiterhin noch die bereits erwähnten Komponenten (c) bis (h) enthalten, die ebenfalls GRAS-Aromastoffe sind.

Der Anteil der Komponenten (c) - (h) in der antimikrobiellen Zusammensetzung ist vorzugsweise kleiner oder gleich 25 Gew.-% und liegt bevorzugt im Bereich von 0,001 bis 9 Gew.-%. Bevorzugt unter den weiteren GRAS-Aromastoffen sind die Phenole (c) und etherische Öle (h).

Am bevorzugtesten im Sinne der vorliegenden Erfindung sind insektizide und antimikrobielle Zusammensetzungen, deren insektizid bzw. antimikrobiell wirksamer Bestandteil ausschließlich aus GRAS-Aromastoffen besteht, d. h. keine "Derivate" der GRAS-Aromastoffe enthält. Als Beispiel einer solchen Zusammensetzung ist ein Gemisch aus Benzylalkohol, einem oder zwei der vorstehend genannten GRAS-Aroma-Alkohole (a2) und Tannin zu nennen. Dieses Gemisch enthält dabei vorzugsweise 20 bis 98 Gew.-% Benzylalkohol und 0,01 - 10 Gew.-% Tannin. Ein weiteres Beispiel einer bevorzugten Zusammensetzung ist ein Gemisch aus 2 Alkoholen, einem Polyphenol (insbesondere Tannin) und einem etherischen Öl (insbesondere einem phenolischen etherischen Öl, Komponente (h3)).

Neben den Komponenten (a) bis (h) können zusätzlich noch weitere Verbindungen (i) wie Alkohole (i1) Emulgatoren (i2), Stabilisatoren (i3), Antioxidantien (i4), Konservierungsmittel (i5), Lösemittel (i6), Trägerstoffe (i7) etc. eingesetzt werden.

Die Lösemittel (i6) sind z. B. pflanzliche Stoffe einschließlich Rapsöl, Sojaöl, Speisefettsäuren etc. und chemische Lösemittel einschließlich Nitroterpentine, Polyurethane, aliphatische Kohlenwasserstoffe, Isoparaffin etc. und Gemische derselben.

Der Anteil der Komponenten (i) an der insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzung darf bis 95 Gew.-% betragen, ist vorzugsweise kleiner als 10 Gew.-% und liegt bevorzugt im Bereich von 0,1 bis 5 Gew.-%.

Bei den Alkoholen (i1) handelt es sich erfindungsgemäß um einwertige oder mehrwertige Alkohole mit 2 bis 10 C-Atomen, vorzugsweise mit 2 bis 7 C-Atomen, wobei die GRAS-Alkohole (a) hiervon nicht umfaßt sind. Vorzugsweise werden solche Mengen an GRAS-Aroma-Alkoholen (a) und weiteren Alkoholen (i1) eingesetzt, daß deren Mischungsverhältnis zwischen 1000 : 1 und 1 : 1000, insbesondere zwischen 100 : 1 und 1 : 100 und besonders bevorzugt zwischen 10 : 1 und 1 : 10 liegt.

Besonders bevorzugt in dem erfindungsgemäßen Verfahren ist die Verwendung von Systemen, die ausschließlich aus GRAS-Aromastoffen bestehen, insbesondere dann wenn die behandelten Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile später als Nahrungsmittel, Getränke oder Genußmittel verzehrt werden oder anderweitig mit dem menschlichen Körper in Verbindung kommen, da hierdurch eine Kontamination der Pflanzen und/oder der Pflanzenbestandteile mit Nicht-GRAS-Verbindungen unterbunden wird. Weiterhin sollte darauf geachtet werden, daß die insektizide und antimikrobielle Zusammensetzung frei von Ethanol und Isopropanol ist bzw. frei von bedenklichen Dosierungen von Ethanol und Isopropanol ist, da diese Stoffe sowohl von den Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen absorbiert werden können, als auch von den Personen, die diese Pflanzen weiter verarbeiten, eingeatmet werden können. Darüber hinaus kann bei der Verwendung dieser Verbindungen Explosionsgefahr bestehen.

Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich für die Behandlung von Pflanzen während der Anzucht und dem Anbau, insbesondere auch kurz vor der Ernte (z. B. während der letzten Woche vor der Ernte) und auch nach der Ernte der Pflanzen. Die insektizide und/oder antimikrobielle Behandlung kann dabei sowohl durch Applikation auf die Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile (z. B. durch Sprühen, Tauchen, Vernebeln etc.) als auch während des Anbaus der Pflanzen durch Zusatz der insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzung zu Nährböden, Nährflüssigkeiten, Wasser, etc. erfolgen. Auf die letztgenannte Weise wird die insektizide bzw. antimikrobielle Zusammensetzung in der Pflanze bzw. dem Pflanzenbestandteil verteilt. Die insektizide und/oder antimikrobielle Zusammensetzung kann dabei sowohl unverdünnt, als auch verdünnt in wässrigen Lösungsmittelsystemen, organischen Lösungsmittelsystemen und/oder Ölsuspensionen mit den Pflanzen in Verbindung gebracht werden.

Es konnte gezeigt werden, daß bei der Applikation auf Pflanzenoberflächen Konzentrationen von insektizider und/oder antimikrobieller Zusammensetzung im Bereich von 0,001 bis 100 mg/g Pflanze vorzugsweise von 0,1 bis 10 mg/g Pflanze einen ausreichenden insektiziden und antimikrobiellen Schutz gewährleisten. Bei der Applikation in Nährmedien und Nährlösungen ist eine Konzentration der antimikrobiellen Zusammensetzung von 0,001 bis 100, vorzugsweise 0,1 bis 10 mg/g Nährboden, bzw. Nährlösung ausreichend. Aus ökonomischen Gründen ergibt sich selbstverständlich, daß eine möglichst geringe Konzentration der insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzung eingesetzt wird.

Insbesondere eignet sich das erfindungsgemäße Verfahren zur Behandlung von z. B. Baumwolle, Getreide, Reis, Mais, Kartoffeln, Tabak, Kaffee, Kakao, Tee, Gemüse, Obst, Saatgut der genannten Pflanzen, Nüsse, Gewürzen, Kräutern, Zierpflanzen, Zucht- und Schnittblumen sowie zur Pflanzenkultivierung.

Insbesondere werden durch das erfindungsgemäße Verfahren die in der folgenden Liste aufgeführten Mikroorganismen, Verderbniserreger, Mykotoxinbildner und Parasiten signifikant verringert, wenn nicht sogar vollständig unterdrückt.

SchimmelpilzeKultur/Pflanze (z. B.)

Mehltauarten	Getreide (Feldpilze)
Rostpilze	Getreide (Feldpilze)
Blattfleckenpilze	Getreide (Feldpilze)
Fusarium-Arten	Getreide (Feldlagerpilze)
Aspergillus-Arten	Getreide (Lagerpilze)
Penicillium-Arten	Getreide (Lagerpilze)

Rhizoctonia	Tabak, Raps
Peronospora	Tabak
Phytophthora	Tabak
Botrytis cinerea	Tabak
Rhizoctonia solani	Reis

Aspergillus Ochraceus	Kaffee
Aspergillus Niger	Kaffee
Clavosporium Fusarium	Kaffee
Penicillium	Kaffee

ParasitenKultur/Pflanze (z. B.)

Lepidopteren	Tomaten; Baumwolle
Lepidopteren (Chilo suppressalis)	Reis
(Chaphalocrosis medinalis)	Reis
(Ostrina nubilalis)	Mais
Myzus persicae	Tabak

VirenKultur/Pflanze (z. B.)

Tomatenmosaikvirus	Tomaten
X-Virus	Kartoffeln

Y-Virus	Kartoffeln
Rice Stripe Virus	Reis
TYM-Virus	Raps
Rizomania	Zuckerrübe
BNYVV	Zuckerrübe

Die erfindungsgemäßen Insektizide und Biozide (d.h. Bakterizide, Fungizide, Viruzide, Sporizide) können neben der insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzung noch weitere Verbindungen, wie die vorstehend genannten Verbindungen (i1)

bis (i7) enthalten. Darüber hinaus können die erfindungsgemäßen Insektizide und Biozide auch in Form von Retardzusammensetzungen vorliegend. Solche Retardzusammensetzungen sind insbesondere bei der Verwendung in Nährböden bevorzugt, um somit eine möglichst lang anhaltende insektizide bzw. biozide Wirksamkeit zu gewährleisten. Geeignete Retardzusammensetzungen sind beispielsweise Mikrokapseln oder Coatings, in denen der Wirkstoff mit einem geeigneten Verkapselungs- oder Coatingmaterial, wie z.B. Cellulosederivaten verkapselt oder gecooated ist.

Die vorliegende Erfindung wird anhand der nachfolgenden Beispiele näher erläutert. Weitere neben der Zusammensetzung des nachfolgenden Beispiels geeignete insektizide und antimikrobielle Zusammensetzungen sind in der WO 96/29859 und der WO 98/58540 genannt, auf die hier explizit Bezug genommen wird.

Beispiele

Die nachfolgenden Kulturpflanzen werden mit einer insektiziden/antimikrobiellen Zusammensetzung besprüht, die die folgenden Bestandteile (in Gew.-%) enthält:

10,0 % Polyphenol (hier: Tannin)

18,2 % Benzylalkohol

60,0 % Propylenglykol

8,0 % Milchsäure

3,8 % etherisches Öl (hier: ein phenolhaltiges etherisches Öl)

Die Ergebnisse sind in den nachfolgenden Tabellen zusammengefaßt.

Weizen

	50%ige Lösung in	Sprühmittel	Schimmelpilze § 35 LMBG (S.A.)	Parasitenlarven (S.A.)
W-0		O-Probe unbehandelt	$5 \times 10^4/\text{g}$	besiedelt 6 Monate nach Ernte
W-1	Wasser	0,001 mg/g	$7 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
W-2	Wasser	0,01 mg/g	$1 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
W-3	Wasser	0,1 mg/g	$6 \times 10^2/\text{g}$	kein Wachstum
W-4	Wasser	1 mg/g	$7 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
W-5	Wasser	10 mg/g	$2 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
W-6	Wasser	100 mg/g	$< 10/\text{g}$	kein Wachstum
W-7	Lösemittel*	0,001 mg/g	$5 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
W-8	Lösemittel*	0,01 mg/g	$4 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
W-9	Lösemittel*	0,1 mg/g	$3 \times 10^2/\text{g}$	kein Wachstum
W-10	Lösemittel*	1 mg/g	$6 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
W-11	Lösemittel*	10 mg/g	$3 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
W-12	Lösemittel*	100 mg/g	$1 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum

* hier Rapsöl

Tabak

	50%ige Lösung in	Sprühmittel	Schimmelpilze § 35 LMBG (S.A.)	Parasitenlarven (S.A.)
T-0		O-Probe unbehandelt	$6 \times 10^4/\text{g}$	besiedelt 6 Monate nach Ernte
T-1	Wasser	0,001 mg/g	$5 \times 10^4/\text{g}$	kein Wachstum
T-2	Wasser	0,01 mg/g	$1 \times 10^4/\text{g}$	kein Wachstum
T-3	Wasser	0,1 mg/g	$8 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
T-4	Wasser	1 mg/g	$4 \times 10^2/\text{g}$	kein Wachstum
T-5	Wasser	10 mg/g	$6 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
T-6	Wasser	100 mg/g	$< 10/\text{g}$	kein Wachstum
T-7	Lösemittel*	0,001 mg/g	$6 \times 10^4/\text{g}$	kein Wachstum
T-8	Lösemittel*	0,01 mg/g	$8 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
T-9	Lösemittel*	0,1 mg/g	$2 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
T-10	Lösemittel*	1 mg/g	$4 \times 10^2/\text{g}$	kein Wachstum
T-11	Lösemittel*	10 mg/g	$6 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
T-12	Lösemittel*	100 mg/g	$4 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum

* hier Rapsöl

Rohkaffee

	50%ige Lösung in	Sprühmittel	Schimmelpilze § 35 LMBG (S.A.)	Parasitenlarven
K-0		O-Probe unbehandelt	$4 \times 10^4/\text{g}$	besiedelt 6 Monate nach Ernte
K-1	Wasser	0,001 mg/g	$9 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
K-2	Wasser	0,01 mg/g	$4 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
K-3	Wasser	0,1 mg/g	$7 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
K-4	Wasser	1 mg/g	$1 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
K-5	Wasser	10 mg/g	$3 \times 10^2/\text{g}$	kein Wachstum
K-6	Wasser	100 mg/g	$8 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
K-7	Lösemittel*	0,001 mg/g	$2 \times 10^4/\text{g}$	kein Wachstum
K-8	Lösemittel*	0,01 mg/g	$3 \times 10^3/\text{g}$	kein Wachstum
K-9	Lösemittel*	0,1 mg/g	$8 \times 10^2/\text{g}$	kein Wachstum
K-10	Lösemittel*	1 mg/g	$4 \times 10^2/\text{g}$	kein Wachstum
K-11	Lösemittel*	10 mg/g	$6 \times 10^1/\text{g}$	kein Wachstum
K-12	Lösemittel*	100 mg/g	$< 10/\text{g}$	kein Wachstum

* hier Rapsöl

Patentansprüche

1. Verfahren zum Schützen von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen vor Insekten und Insektenlarven, umfassend
 - das Verteilen oder Auftragen einer insektiziden Zusammensetzung auf der Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile und/oder
 - das Verteilen der insektiziden Zusammensetzung in der Pflanze oder dem Pflanzenbestandteil,

wobei die insektizide Zusammensetzung wenigstens zwei GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aromastoffe enthält.

2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei die GRAS-Aromastoffe ausgewählt sind aus (a) GRAS-Aroma-Alkoholen oder deren Derivate, (b1) Polyphenolverbindungen, (b2) GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate, (c) Phenolen oder deren Derivate, (d) Estern, (e) Terpenen, (f) Acetalen, (g) Aldehyden und (h) etherischen Ölen.
3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei die insektizide Zusammensetzung wenigstens einen GRAS-Aroma-Alkohol (a), insbesondere Benzylalkohol, enthält.
4. Verfahren nach Anspruch 3, wobei die insektizide Zusammensetzung weniger als 50 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 30 Gew.-%, besonders bevorzugt weniger als 20 Gew.-% Ethanol, Isopropanol oder Benzylalkohol oder eines Gemisches dieser Stoffe enthält.
5. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei die insektizide Zusammensetzung wenigstens einen hydrophilen, alkoholischen GRAS-Aromastoff und/oder einen hydrophilen, nichtalkoholischen GRAS-Aromastoff enthält.
6. Verfahren nach Anspruch 5, wobei die insektizide Zusammensetzung weiterhin Benzylalkohol und/oder eine Polyphenolverbindung (b1) enthält.

7. ~~Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, wobei die insektizide Zusammensetzung~~

- (a) einen oder mehrere GRAS-Aroma-Alkohole oder deren Derivate und
- (b) einen oder mehrere Aromastoffe, ausgewählt aus
 - (b1) Polyphenolverbindungen und
 - (b2) GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate
 enthält.

8. Verfahren nach Anspruch 7, wobei die insektizide Zusammensetzung 0,1 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 99 Gew.-%, Komponente (a), 0 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 10 Gew.-%, Komponente (b1) und 0 bis 70 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 30 Gew.-%, Komponente (b2) enthält.

9. Verfahren zum Schützen von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen vor mikrobiellem Befall, umfassend
- das Verteilen oder Auftragen einer antimikrobiellen Zusammensetzung auf der Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile und/oder
 - das Verteilen der antimikrobiellen Zusammensetzung in der Pflanze und/oder dem Pflanzenbestandteil,

wobei die antimikrobielle Zusammensetzung den GRAS(Generally Recognized As Safe)-Aroma-Alkohol Benzylalkohol und wenigstens einen weiteren GRAS-Aromastoff enthält.

10. Verfahren nach Anspruch 9, wobei die weiteren GRAS-Aromastoffe ausgewählt sind aus (a) GRAS-Aroma-Alkoholen oder deren Derivate, (b1) Polyphenolverbindungen, (b2) GRAS-Aromasäuren oder deren Derivate, (c) Phenolen oder deren Derivate, (d) Estern, (e) Terpenen, (f) Acetalen, (g) Aldehyden und (h) etherischen Ölen.

11. Verfahren nach Anspruch 10, wobei die antimikrobielle Zusammensetzung weniger als 50 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 30 Gew.-%, besonders bevorzugt weniger als 20 Gew.-% Benzylalkohol oder eines Gemisches von Benzylalkohol mit Ethanol und/oder Isopropanol enthält.

23. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 22, wobei die insektizide oder antimikrobielle Zusammensetzung weiterhin ein oder mehrwertige Alkohole mit 2 bis 10 C-Atomen, Emulgatoren, Stabilisatoren, Antioxidantien, Konservierungsmittel, Lösemittel und/oder Trägerstoffe enthält.

24. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 22, wobei die insektizide oder antimikrobielle Zusammensetzung ausschließlich aus GRAS-Aromastoffen besteht.

25. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 24, wobei die Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile ausgewählt sind aus Baumwolle, Getreide, Reis, Mais, Kartoffeln, Tabak, Kaffee, Kakao, Tee, Gemüse, Obst, Nüsse, Gewürze, Kräuter, Saatgut, Zierpflanzen, Zucht- und Schnittblumen.

26. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 25, wobei das Behandeln während der Anzucht, dem Anbau, vor und/oder nach der Ernte erfolgt und/oder wobei das Behandeln ausgewählt ist aus einer Applikation der antimikrobiellen Zusammensetzung auf die Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenmaterialien und einer Zugabe der antimikrobiellen Zusammensetzung zu Nährboden, Nähstofflösungen und/oder Wasser.

27. Verfahren nach Anspruch 26, wobei die Applikation auf die Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenmaterialien ausgewählt ist aus Sprühen, Tauchen und Vernebeln.

28. Insektizid, umfassend die insektizide Zusammensetzung, wie in den Ansprüchen 1 bis 8 und 13 bis 24 definiert.

29. Biozid, insbesondere Fungizid und Bakterizid, umfassend die antimikrobielle Zusammensetzung, wie in den Ansprüchen 9 bis 24 definiert.

30. Verwendung einer insektiziden Zusammensetzung, wie in Ansprüchen 1 bis 8 und 13 bis 24 definiert, zur Behandlung von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen.

31. Verwendung einer antimikrobiellen Zusammensetzung, wie in Ansprüchen 9 bis 24 definiert, zur Behandlung von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen.

Zusammenfassung

Die vorliegende Erfindung betrifft Verfahren zum Schützen von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen vor Insekten und Insektenlarven und vor mikrobiellem Befall, umfassend das Verteilen oder Auftragen von speziellen insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzungen auf der Oberfläche der Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteile und/oder das Verteilen der Zusammensetzungen in der Pflanze und/oder dem Pflanzenbestandteil; Insektizide und Biozide, umfassend diese insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzungen sowie die Verwendung der insektiziden bzw. antimikrobiellen Zusammensetzungen zur Behandlung von Pflanzen und/oder Pflanzenbestandteilen.

THIS PAGE BLANK (USPTO)